

## Property of geopolymers with aluminum smelting waste

Hakmin Kim and Yootaek Kim<sup>†</sup>

Department of Materials Engineering, Kyonggi University, Suwon 16227, Korea

(Received July 20, 2022)

(Revised July 28, 2022)

(Accepted August 9, 2022)

**Abstract** Geopolymers were made by mixing IGCC slag and aluminum smelted waste and their properties were compared with those of IGCC slag based geopolymers. When two raw materials were mixed, the highest compressive strength was obtained at 1.78 of Si/Al ratio. Because the change in compressive strength and density was not so sensitive by the change in Si/Al ratio; that is, the permissible range of Si/Al ratio mixing ratio is broad, it was speculated this broad permissible range would be advantageous for commercialization. The Compressive strength of geopolymers including red mud was higher than that of IGCC based ones and the safety was confirmed by TCLP test. Therefore, it was concluded that the making geopolymers by mixing red mud not only enhances the properties of geopolymers but also gives a recyclability as safe construction materials.

**Key words** Geopolymer, Red mud, IGCC slag, Si sludge, Mechanism, Curing, FT-IR

## 알루미늄제련 폐기물을 첨가한 지오폐리머의 물성

김학민, 김유택<sup>†</sup>

경기대학교 신소재공학과, 수원, 16227

(2022년 7월 20일 접수)

(2022년 7월 28일 심사완료)

(2022년 8월 9일 게재확정)

**요약** 알루미늄제련 폐기물을 IGCC 슬래그와 혼합하여 지오폐리머를 제조하고 물성을 기존 IGCC 슬래그 기반 지오폐리머와 비교하였다. 두 원료를 혼합했을 때 Si/Al 비율 1.78에서 가장 좋은 압축강도 값을 보였으며, Si/Al의 변화에 따라서 압축강도 및 밀도의 변화가 민감하지 않아 즉, 혼합 허용범위가 상당히 넓어 상용화시 유리하다고 판단되었다. 알루미늄제련 폐기물을 첨가한 지오폐리머는 기존 IGCC 슬래그 기반 지오폐리머 대비 압축강도가 높은 것을 확인할 수 있었으며, TCLP법에 의해 안전성 확인을 한 결과 인체에 무해하다는 것을 확인할 수 있었다. 따라서 알루미늄제련 폐기물을 일정 비율로 IGCC 슬래그와 혼합하여 지오폐리머를 제조한다면 지오폐리머의 물성 향상에도 도움이 될 뿐만 아니라 안전한 건축자재로 재활용될 수 있다고 결론지을 수 있었다.

### 1. 서론

최근 국제사회는 지구온난화의 심각성을 인지하고 이를 해결하기 위해 매년 지구온도 상승을 1.5°C 이하내로 억제하는 정책을 발표했으며, 2050년까지 탄소의 순배출량이 0이 되는 탄소 중립 프로젝트를 진행하고 있다. 탄소 중립이란, 인간의 활동에 의해 발생한 온실가스 배출량을 최대한 줄이고, 나오는 온실가스에 대해서는 제거

혹은 흡수해서 실질적으로 배출되는 양을 0으로 수렴된다는 개념이다. 즉, 탄소의 배출량과 흡수량이 동일하게 나와 순배출량이 0이 된다는 뜻이다.

현대 건설 산업에서 차지하는 이산화탄소 배출량은 전 세계를 기준으로 8%에 육박하고 있다. 이에 시멘트 사용량을 줄여 이산화탄소를 감축시키는 것이 가장 효과적인 방법임에 틀림없다. 하지만 현재 건설업계에서 사용되고 있는 포틀랜드 시멘트를 생산하는 과정에서 대량의 이산화탄소가 발생하는 것을 피할 수 없다. 따라서 우리는 시멘트 대체재를 찾는 문제에 직면하게 되었으며, 이 문제의 해결을 위해 지오폐리머(geopolymer)가 등장하게

<sup>†</sup>Corresponding author  
E-mail: ytkim@kgu.ac.kr

되었다.

지오폐리머란 Si와 Al이 풍부하게 존재하는 무기질 원료들이 강알칼리성 용액을 만나게 되면 이온들이 용출되어 지오폐리머 반응(geopolymerization)을 통해 Si-O-Al-O 결합의 구조인 3차원 망목 구조를 형성시켜 뛰어난 강도가 발현되는 비정질 알루미늄 실리케이트를 뜻한다. 지오폐리머의 특성으로는 초기 높은 압축강도, 높은 내화학적 및 내구성과 내부식성 등 다양한 특성을 가지고 있어 일반 포트랜드 시멘트 대비 우수한 물리/화학적 특성을 가지고 있으며 상대적으로 낮은 탄소량을 배출하기 때문에 시멘트 대체재로 사용할 가능성이 충분하다고 여겨지고 있으며 이에 대한 많은 연구가 진행되고 있다[1].

본 연구에서 사용되는 IGCC 슬래그(integrated gasification combined cycle slag)는 석탄을 고온 및 고압에서 가스화 시켜 연료로 사용하는 청정 석탄화력 발전기술인 석탄가스화 복합발전에서 공정석탄가스화 복합발전 공정에서 발생하는 부산물이다. 석탄가스화 복합발전 공정은 일반 석탄 화력발전에 비해 높은 발전효율을 가지며, 직접 연소 발전에 비해서는 황산화물 90% 이상, 질소산화물 75% 이상, 이산화탄소 25%의 저감이 가능하여 차세대 친환경 석탄화력 기술로 각광받고 있다[2]. 하지만 이로 인해 연간 약 10만 톤의 부산물이 나와 매립을 진행해야 되므로 이에 상당한 비용이 소요된다. 이에 본 연구는 부산물인 IGCC 슬래그를 이용해서 지오폐리머를 제작하게 되면 순환자원의 재활용을 통한 매립비용 절감 및 확보를 목표로 하고 있다[3].

또한, 이번 연구에서 사용된 알루미늄제련 폐기물(레드 머드; red mud) 역시 보크사이트 원석으로부터 수산화알루미늄을 제조하는 공정에서 발생하는 공정 부산물이다. 주된 성분으로는  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$  등이 있으며, 국내에서 연간 30만 톤 이상이 발생하는 것으로 추정되고 있다[4]. 또한 알칼리 특성 및 화학적 구성 때문에 매립하기도 까다로운 상황이다. 따라서 지오폐리머 제작에 사용가능 하다면 매립 문제 및 부산물 재활용이 가능하기 때문에 친환경적인 물질을 부원료로 재활용 하는 것이어서 이 역시 환경보호에 일조할 수 있을 것으로 기대 된다[5].

본 연구가 지향하는 지오폐리머는 상대적으로 높은 압축강도를 가지면서 밀도가 1.0 이하 혹은 1.0 준하는 시편을 제작하기 위해서는 Si sludge 첨가가 필수적이다. 또한 Si sludge는 시편 내에서 발포제(bloating material) 역할을 하게 되어 발포의 정도에 따라 첨가되는 양이 다

르며, 양이 많을수록 발포가 심하게 일어나며 적을수록 발포가 적고 일정 수준이상의 강도를 가지게 한다. Si sludge도 앞선 말한 두 원료와 동일하게 산업부산물로써 재활용이 가능해 이 역시 친환경적인 발포제라고 말할 수 있다[6].

이번 연구는 IGCC 기반 지오폐리머 선행연구[7-9]들과 실험조건들은 일치시켰으며, IGCC 슬래그에 알루미늄제련 폐기물을 혼합하여 실험을 진행하였다. 이를 통해 알루미늄제련 폐기물을 첨가하면 지오폐리머 특성에 어떤 영향을 끼치며, 첨가한 지오폐리머와 그렇지 않는 지오폐리머를 비교 및 분석을 통해 물성변화의 원인을 규명하고자 하였다. 또한 알루미늄제련 폐기물은 현재 지정 폐기물로 분류되어 있어 이의 적절한 재활용이 필요하며, 만약 지오폐리머의 제작에 재활용이 가능할 경우, 순환 자원의 효과적 활용 제고 및 환경보호에 일조한다는 차원에서 본 연구 의의가 있다고 하겠다.

## 2. 실험 방법

### 2.1. 원료

본 연구에서 사용한 원료는 IGCC 슬래그, Si 슬러지, 알루미늄제련 폐기물을 사용하여 경량 지오폐리머를 제조하였다. 앞의 두 가지 원료의 경우, 선행 논문들을 통해 수차례 반복 설명 되었으므로 여기서는 이에 대한 설명은 생략하기로 한다[7-9]. 알루미늄제련 폐기물의 경우, 완전히 건조된 알루미늄제련 폐기물을 후처리 공정 없이 바로 사용하였다. Table 1에는 알루미늄제련 폐기물의 성분을 XRF(X-ray fluorescence)로 분석한 것을 나타내었다. 알려진 바와 같이 알루미늄제련 폐기물에는 다량의 철성분이 있는 것을 확인할 수 있었으며, 지오폐리머를 만들기에는 적절치 않다는 것을 알 수 있다. 따라서 지오폐리머 제조를 위한 충분한 Al 성분과 Si 성분의 보충을 위해 IGCC 슬래그와 Si 슬러지를 첨가하여 지오폐리머 반응이 일어날 수 있는 조건을 만들고 또한 이들 성분의 적절한 혼합을 통해 지오폐리머 제조에 적합한 Si/Al 비를 확보하고자 하였다. 이번 실험에서 가장 중요한 실험조건 중 하나는 지오폐리머의 Si/Al 비율을 고정하는 것이었는데, 이론적으로 Si/Al 비율이 1.5~2.0에서 높은 압축강도를 보인다는 보고를 토대로 실험을 진행했으며, 그 결과 Si/Al 비율이 약 1.78에서 가장 좋

Table 1  
Chemical composition of red mud analysed by XRF (Unit: wt.%)

Material	$\text{SiO}_2$	$\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{Fe}_2\text{O}_3$	CaO	MgO	$\text{Na}_2\text{O}$	$\text{K}_2\text{O}$	$\text{TiO}_2$	$\text{P}_2\text{O}_5$	MnO
Red mud	8.48	19.71	46.43	8.35	0.41	5.45	0.03	10.03	0.24	0.04

은 물성이 나타나는 것을 확인할 수 있었다[10].

알칼리 활성화제의 농도 역시 예비실험을 통해 알루미늄제련 폐기물을 포함한 지오폴리머를 제작할 수 있는 최적의 농도 조건을 확인하였으며, 선행 연구와 동일하게 15 M을 사용하였다[7]. 알칼리 활성화제 제작을 위해 증류수와 수산화나트륨(sodium hydroxide, pellet; NaOH: 97 wt%, 대정화금) 고체 펠렛을 원료를 600 g 기준으로 진행했을 때, 70 g : 58.5 g로 칭량하고 교반기(No. GLHPS-C12, Global LAB)를 통해 알칼리 활성화제를 제작하였다. 1~2시간 동안 교반기를 통해 완성된 알칼리 활성화제를 규산나트륨(sodium silicate;  $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot \text{Na}_2\text{O} = 9 \sim 10$  wt%, silica:  $\text{SiO}_2 = 28 \sim 30$  wt%, 대정화금)과 1:1의 비율로 원료에 섞어 시편을 제작하였다.

## 2.2. 실험 조건 및 절차

본 연구는 알루미늄제련 폐기물을 포함하지 않은 IGCC 슬래그 및 Si 슬러지를 원료로 하는 지오폴리머 제조에 관한 선행연구를 기반으로 실험조건들을 찾았으며, 그것들은 다음과 같다: W/S(water/soild) ratio 0.2, Si 슬러지 0.5 wt.%, 15 M 알칼리 활성화제, 양생온도( $103^\circ\text{C}$ ), Si/Al ratio 1.78, 건조기(No. Maxterile<sup>TM</sup>) 및 오토클레이브(DAIHAN Scientific)를 이용한 양생방법 사용하여 연구를 진행하였다.

이번 연구에서는 두 가지 종류의 지오폴리머를 제조하였다. IGCC 슬래그와 알루미늄제련 폐기물을 일정 비율로 섞어서 만든 고강도 지오폴리머와 추가적으로 Si 슬래그를 첨가한 초경량 발포 지오폴리머이다. 기초적인 원료준비 공정을 마친 IGCC 슬래그, 알루미늄제련 폐기물 및 Si 슬러지를 조건에 알맞게 칭량을 진행하고 볼밀을 통해 10~20분 동안 골고루 섞일 수 있도록 하였다. 볼밀을 마친 원료는 준비한 수산화나트륨(알칼리 활성화제)과 규산나트륨을 1:1 비율로 넣고 혼합하였다. 여기서 우리는 초경량 발포 지오폴리머와 비교할 수 있는 대조군을 만들기 위해 몰드 성형 전 1분 혼합과 최적 혼합(혼합이 가능할 때까지 최대한 혼합)을 진행하였다[7]. 혼합을 마친 원료는 황동 몰드( $5 \times 5 \times 5 \text{ cm}^3$ )에 맞게 성형을 진행했다.

성형을 마친 시편들은 건조기 혹은 오토클레이브에서  $103^\circ\text{C}$ 로 24시간 동안 양생을 진행하였다. 양생을 끝낸 시편들은 몰드의 크기에 맞게 톱으로 커팅(cutting)을 진행한 뒤 탈형(demolding)을 하였다. 탈형을 끝낸 시편들은 전자저울을 통해 밀도를 측정했으며, 압축강도 측정기(No. JI-303, 제일정밀산업기기)를 사용하여 압축강도를 측정하였다. 제조된 지오폴리머의 결합상태를 분석하기 위해 XRD, XRF 및 FT-IR(적외선 분석법: Fourier transformation infra-red) 등이 사용되었다.

## 3. 결 과

### 3.1. 압축강도

Figure 1은 Si/Al 비율에 따른 지오폴리머의 압축강도 및 밀도를 나타낸 것이다. 그림을 보게 되면 Si/Al 비율이 증가할수록 압축강도가 증가하다가 일정 비율 이상을 넘어가게 되면 압축강도가 감소하는 것을 알 수 있다. 이를 통해 Si/Al 비율이 약 1.78에서 가장 높은 압축강도와 상대적으로 낮은 밀도를 갖는 것을 알 수 있었다. W/S 비의 경우, 0.2 이상 혹은 0.19 이하로 가져가게 되면 혼합 자체가 진행되지 않아 0.19, 0.2 두 가지로 나누어서 진행하였다. 그 결과, W/S 0.2에서 높은 압축강도와 낮은 밀도를 가지는 것을 알 수 있었다.

IGCC 슬래그만을 가지고 제조한 지오폴리머의 압축강도는 적절한 조건에서 100 MPa 이상의 압축강도를 나타낸 것과 비교해보면, 알루미늄제련 폐기물을 포함한 지오폴리머의 압축강도는 IGCC 슬래그만으로 제조한 지오폴리머 압축강도의 절반밖에 되지 않으나, 50 MPa 정도의 압축강도를 갖는다면 건축 재료로 충분히 사용될 가능성이 있으며, 일반 포틀랜드 시멘트를 대체할 수 있을 것으로 사료된다.

Figure 1에서 볼 수 있듯이 Si/Al 1.56부터 2.2까지의 넓은 범위에서, 또한 W/S 비 0.19에서 0.20까지의 범위에서 비교적 오차범위가 적은 압축강도 값(37~52 Mpa)을 보이고 있다. 이는 위의 제조조건에서는 최소한의 압축강도 37 MPa를 확보할 수 있다는 것이며, 일정수준 이상의 압축강도를 확보하기 위해서는 세심한 제조조건의 확보가 필요 없다는 것을 알 수 있었다. 이는 다시 말해, 작업조건의 범위가 넓어 필요한 압축강도를 가진 지오폴리머를 쉽게 제조할 수 있음을 뜻하는 것이다.

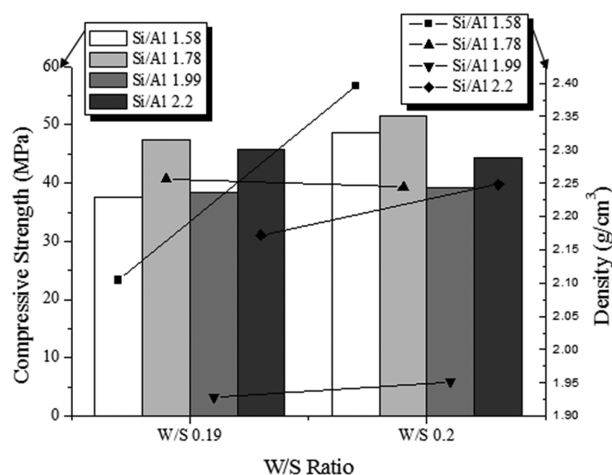


Fig. 1. Compressive strength and density of geopolymers containing red mud according to the Si/Al ratio and W/S ratio.

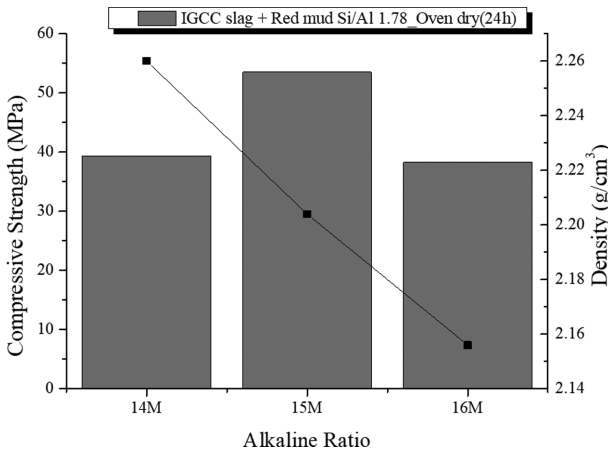


Fig. 2. Compressive strength and density of geopolymers containing red mud according to the concentration of alkaline activator.

Figure 1에서, Al/Si 비율 1.58은 알루미늄제련 폐기물을 41.7 wt.%를 포함한 것을 의미하며, Al/Si 비율 2.2는 알루미늄제련 폐기물이 16.7 wt.% 포함되었다는 것을 의미한다. 알루미늄제련 폐기물이 많이 포함될수록 Al/Si 비율은 높아지지만, 비율을 2.2 이하로 유지할 수 있을 정도로 알루미늄제련 폐기물을 재활용하여 지오폐리머 제조에 이용한다면, Fig. 1의 어떤 조건에서도 37 MPa 이상의 압축강도를 확보할 수 있으며, 이는 알루미늄제련 폐기물 재활용 가능성이 매우 높으며, 제조 조건도 까다롭지 않다는 것을 의미하는 것이다.

Figure 2는 알칼리 활성화제 농도(몰수)에 따른 지오폐리머의 압축강도와 밀도의 변화를 나타낸 것이다. 그림을 보면 15 M에서 가장 높은 압축강도(~54 MPa)를 가지며, 14 M과 16 M에서는 40 MPa에 약간 못 미치는 결과를 나타내었다. 이를 통해 선행실험[7]과 동일한 조건에서 진행되는 것이 알루미늄제련 폐기물을 포함한 지오폐리머 물성 확보에 바람직 한 것을 알 수 있었다. Figure 2에서 볼 수 있듯이 다른 모든 조건을 같게 할 경우 알칼리 활성화제의 농도에 따라서 압축강도의 변화가 비교적 크게 나타나기 때문에 지오폐리머의 최대강도를 얻기 위해서는 알칼리 활성화제의 세심한 조절과 선정이 중요한 것을 알 수 있다.

Figure 3에는 양생방법에 따른 알루미늄제련 폐기물 포함된 3개의 지오폐리머 시편으로부터 얻은 압축강도와 밀도 변화를 나타내었다. 실험결과 알루미늄제련 폐기물을 포함하지 않은 IGCC 슬래그 지오폐리머를 제조하였던 선행실험에서의 결과와 동일한 결과를 나타내었다[7-9]. 총 3개의 시편을 비교/측정한 결과, 오토클레이브에서 양생을 진행한 시편에서 상대적으로 높은 압축강도를 보였으며, 밀도 역시 상대적으로 높은 것으로 나타났다. 이러한 경향은 3개의 시편에서 모두 일정하게 나타낸

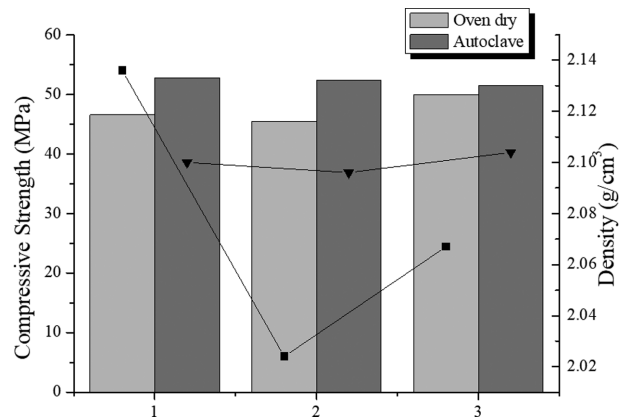


Fig. 3. Compressive strength and density of geopolymers containing red mud according to curing method. The numbers on the abscisa are the identification numbers of the specimens.

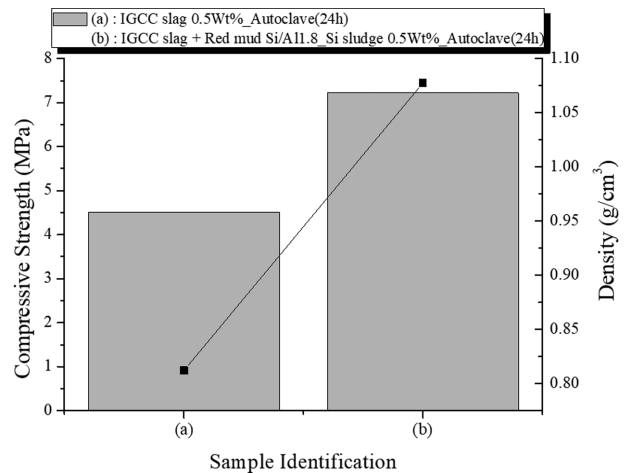


Fig. 4. A comparison of compressive strength and density of geopolymers which contain (a) no red mud and (b) red mud.

것을 확인할 수 있었다. 압축강도의 차이는 크지 않았으나 알루미늄제련 폐기물을 포함한 지오폐리머의 최대 압축강도를 얻기 위해서는 오토클레이브를 이용한 양생이 바람직한 것으로 판단되었다. 밀도 역시 오토클레이브 양생이 높게 나타났으며, 오픈양생의 경우와는 달리 큰 오차 없이 2.1 g/cm<sup>3</sup> 정도로 일정하게 나타났다.

Figure 4는 오토클레이브에서 양생한 알루미늄제련 폐기물을 포함한 경량 지오폐리머 시편들로 각각 알루미늄제련 폐기물을 첨가하지 않은 시편(a)과 알루미늄제련 폐기물을 첨가한 시편(b)의 압축강도 및 밀도의 변화를 보여주고 있다. 두 시편 모두 발포 지오폐리머로 동일하게 Si 슬러지를 0.5 wt.% 첨가하여 제조하였다. 그 결과, 알루미늄제련 폐기물을 첨가하지 않은 시편들의 압축강도는 5 MPa를 넘지 못하였다. 반면에 알루미늄제련 폐기물을 첨가해서 제조한 시편들의 압축강도는 약 7 MPa로 알루미늄제련 폐기물을 첨가하지 않은 시편들보다 높

게 나타났다. 이는 수산화알루미늄에서 추출과정에 사용되는 NaOH에 의해 알루미늄제련 폐기물에 추가적인 Na 성분이 존재하고, 이로 인해 축중합 과정에서 이성분이 촉진제로 작용하여 압축강도가 더 높게 나타난 것으로 사료된다[11]. 또한 알루미늄제련 폐기물의 첨가로 지오폐리머 반응에 의한 중합 강도가 증진할 뿐 아니라 알루미늄제련 폐기물 내에 존재하는 결정수에 의해서도 중합체의 강도가 향상되어 알루미늄제련 폐기물을 포함하지 않는 지오폐리머의 압축강도에 비해 상대적으로 크게 나타난 것으로 사료된다[12]. 알루미늄제련 폐기물 내에 존재하는 결정수에 대한 더 자세한 설명은 3.3절에서 추가적으로 설명할 것이다.

### 3.2. XRD

Figure 5는 2종류의 지오폐리머 시편들로부터 얻은 XRD 패턴으로 알루미늄제련 폐기물 첨가 유무에 따른 피크 차이를 보여주고 있다. Figure 5는 (a) IGCC 슬래그를 원료로 제조한 발포 지오폐리머, (b) 알루미늄제련 폐기물이 첨가된 발포 지오폐리머, 그리고 (c) 알루미늄제련 폐기물 원료로부터 얻은 XRD 패턴들이다. Figure 5에서 볼 수 있듯이 IGCC로 제조한 발포 지오폐리머는 전형적인 비정질 패턴을 보이고 있다. 한편, Fig. 5(c)의 알루미늄제련 폐기물 원료로부터 얻은 XRD 패턴의 경우 뚜렷한 결정질 패턴을 보이고 있는 것을 확인할 수 있다. Figure 5(b)에서 볼 수 있는 알루미늄제련 폐기물이 포함된 발포 지오폐리머는 IGCC를 원료로 한 시료보다는 많은 결정질 피크를 볼 수 있으며, IGCC를 원료로 한 시편들에서 보이는 전형적인 비정질 피크 역시 관찰할 수 있다. 그래서 Fig. 5(c)에서 관찰 가능한 강도가 강한 주 피크들, 즉 Fe 또는 Ti 성분들의 결정상들에 의한 피크들이 Fig. 5(b)에서도 관찰됨을 알 수 있다. 이렇게 패턴 사이에 비정질 물질들에 의한 피크 백그라운드(background) 증가현상이 나타나는 것은 Fe와 Ti 함량

즉, 중금속 함량이 증가함에 따라 지오폐리머 반응이 감소했다는 보고도 있지만[13], 본 연구의 결과를 보면 중금속함량과 지오폐리머 반응사이의 관계를 규명할 증거가 부족하였으며, 오히려 이보다는 알루미늄제련 폐기물 내에 존재하는 중금속 외기타 반응 촉진 성분들로 인해 지오폐리머 반응이 증가하는 요인이 중금속 성분에 의해 감소하는 요인보다 우세하여 결국 알루미늄제련 폐기물을 포함한 지오폐리머의 압축강도가 소폭이지만 증가하는 것으로 사료되었다.

### 3.3. FT-IR

Figure 6은 Fig. 5에서와 같은 시편들의 FT-IR 피크를 보여 주고 있다. Figure 6(a), 6(b), 6(c)은 각각 IGCC 슬래그를 원료로 한 발포 지오폐리머, 알루미늄제련 폐기물을 첨가한 발포 지오폐리머, 그리고 알루미늄제련 폐기물만의 FT-IR 스펙트럼들을 보여 주고 있다. 두 개의 지오폐리머 시편 모두 오토클레이브에서 양생하였으며, 양생 후 추가적인 재령(aging)은 하지 않았다. Figure 6에서 볼 수 있듯이, Al-O-Si, Al-O-Al, Si-O-Si 등이 포함된 범위인  $950\sim 1200\text{ cm}^{-1}$  파장들은 geopolymerization의 정도를 예측할 수 있는 피크들이다. 또한  $1300\sim 1600\text{ cm}^{-1}$ 에서 나타난 C-H 결합이나  $600\sim 750\text{ cm}^{-1}$  파장에서 나타나는 C-C, C-O 결합들을 통해서 지오폐리머 반응의 정도를 예측할 수 있다[5]. 이를 압축강도와 관련지어 말하게 되면, IGCC 슬래그를 원료로 한 지오폐리머의 absorbance는 대략 0.09~0.1 사이에 존재하는 것을 확인할 수 있다. 하지만 알루미늄제련 폐기물이 포함된 경량 지오폐리머의 경우, absorbance가 약 0.3까지 올라가는 것을 그림을 통해 확인할 수 있었다. 이를 통해 알루미늄제련 폐기물 내에 잔존하는 NaOH가 지오폐리머 반응 촉진제 역할을 하기 때문에 알루미늄제련 폐기물을 포함하지 않는 IGCC 슬래그를 원료로 하는 경량 지오폐리머 보다는 높은 압축강도를 보이는 것으로 사료되었다. 하지만

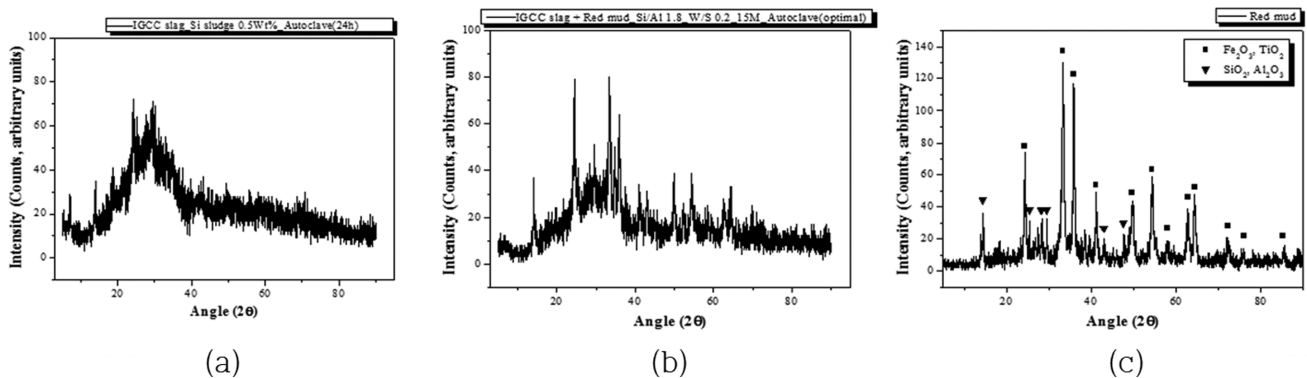
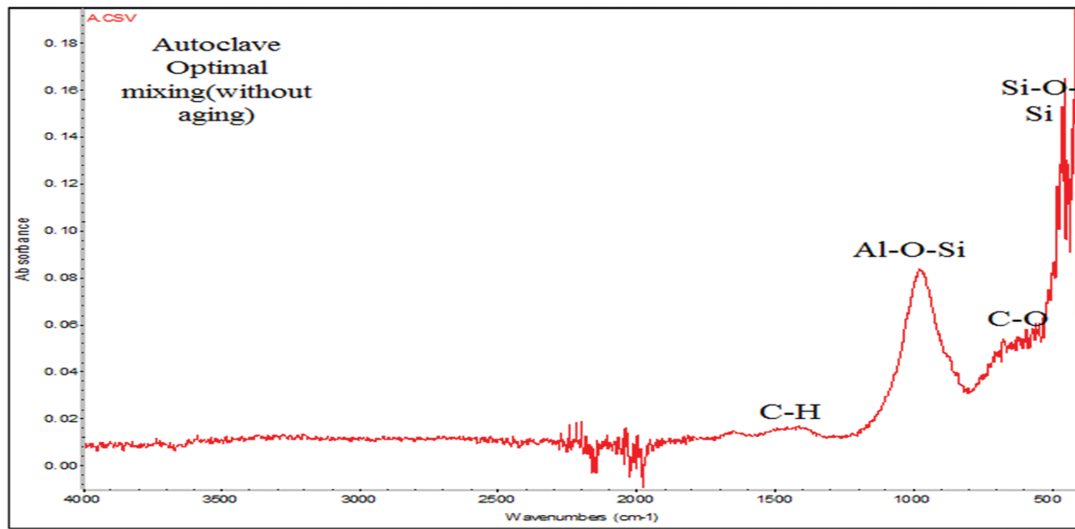
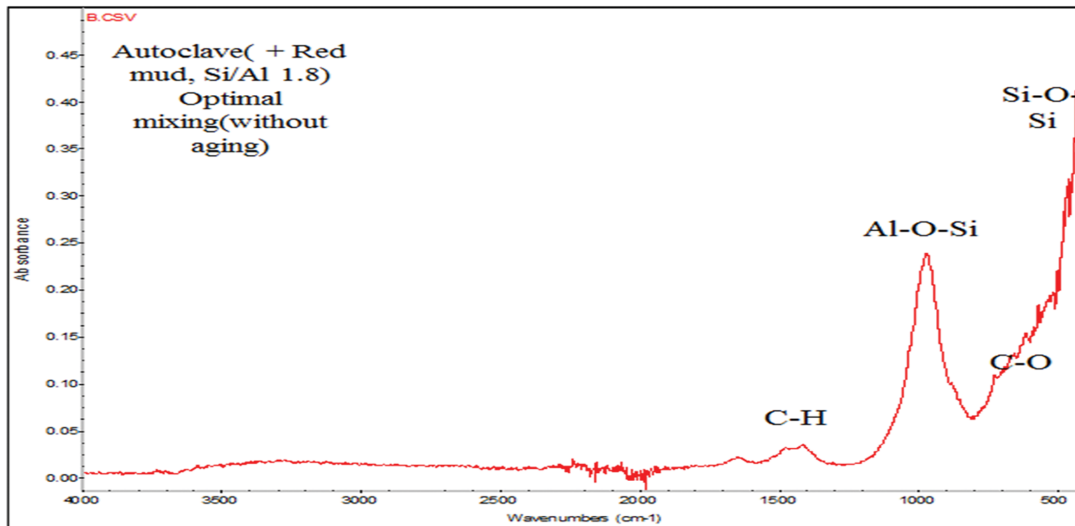


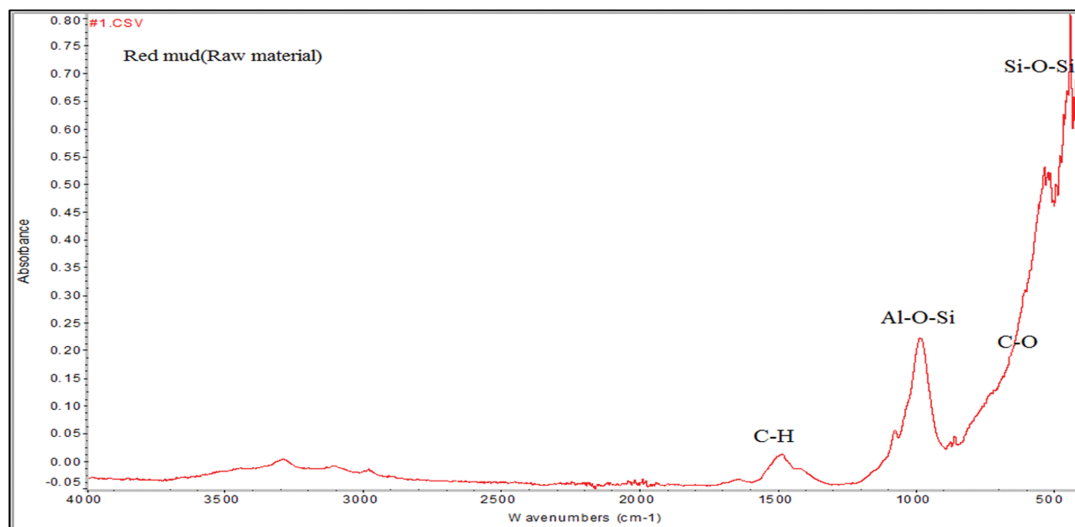
Fig. 5. X-ray diffraction patterns of lightweight geopolymers and red mud. (a) Geopolymer made of IGCC slag after the autoclave curing, (b) Geopolymers made of IGCC slag and red mud with an autoclave curing, (c) Red mud as received.



(a)



(b)



(c)

Fig. 6. FT-IR spectra obtained from (a) a IGCC based geopolymer, (b) geopolymer containing red mud, and (c) red mud only (as received).

Table 2  
Recycling scope according to the enforcement regulations of the waste management act

Classification Number	Types of Waste	Recycling Method
51-02-09 (Inorganic onyrate)	Bauxite residue	R-3-1, R-3-2, R-4-2, R-4-7, R-7-3, R-10
Recycling Method	Recycling detailed classification by types	
R-3: The type of recovery of solid resources or the manufacture of raw materials for the product.	1: Type of recovery of metal or non-metal resources from waste through simple processes such as dismantling, separation, crushing and sorting. 2: The type of recovery of metal or nonmetal resources from waste through processes such as melting, reaction, extraction and etc.	
R-4: The type of product that you manufacture.	2: Type of manufacture of non-metallic mineral products such as aggregates, glass, cement, concrete and ready-mixed concrete, refractories and ceramics or other non-metallic mineral products such as ascone, asphalt and solidifying agents. 7: Type of manufacture of chemicals such as organic/inorganic compounds, oxides or chemical products such as pigments, paints and colorants.	
R-7: The type of recycling into soil or common water and etc.	3: Type used as soil material for waste reclamation facilities or water proofing materials.	
R-10	Type of intermediate waste for product manufacturing.	

알루미늄제련 폐기물만의 FT-IR 피크(Fig. 6c)를 보면 IGCC 기반 경량 지오폐리머보다는 피크가 높고, 알루미늄제련 폐기물이 첨가된 경량 지오폐리머 보다는 낮은 피크를 갖는 것을 확인할 수 있다. 결과적으로 알루미늄제련 폐기물이 혼합된 경량 지오폐리머에서 나타난 피크는 지오폐리머반응에 의한 영향도 있겠지만, 그것 보다는 기존 알루미늄제련 폐기물에 이미 존재하고 있던 Si-O-Al, Al-O-Si 등이 다량으로 존재하여 피크 값에 영향을 준 것으로 판단된다. 하지만, Fig. 6b의 1000 cm<sup>-1</sup>에 존재하는 Al-O-Si 피크가 Fig. 6c의 같은 파장에 있는 Al-O-Si 피크보다 조금이라도 크다는 것은 많지는 않을지라도 약간의 지오폐리머 반응이 일어났다는 증거이기도하기 때문에 알루미늄제련 폐기물을 포함한 시편의 압축강도가 더 클 것이라는 예상을 할 수 있으며 이는 본 실험의 결과와 일치하고 있다.

### 3.4. ICP

실험 진행에 앞서, 이번 연구에서 사용될 알루미늄제련 폐기물의 안전성 및 환경적 영향을 알아보기 위해서 ICP 시험을 통해 기존 IGCC 슬래그를 원료로 한 지오폐리머, 알루미늄제련 폐기물을 혼합한 지오폐리머, 그리고 알루미늄제련 폐기물 원료, 3가지를 비교 및 분석해 보았다. 먼저 Table 2를 보게 되면 알루미늄제련 폐기물은 폐기물관리법 시행규칙(별표 4)을 통해 일반폐기물로 지정되어 있으며, 건설 산업을 포함한 다양한 산업에서 재활용이 가능하다는 것을 알 수 있다.

Table 3은 유도결합 플라즈마 분광광도계(Inductively Coupled Plasma-Optical Emission Spectrometer, ICP-OES)분석을 사용하여 IGCC 슬래그 기반 지오폐리머

Table 3  
ICP-OES analysis results of IGCC slag based geopolymer, red mud, and red mud mixed geopolymer by TCLP (US Waste Management Regulation) (Unit: mg/l)

Sample	Pb	Cu	As	Cd	Cr	Ni
1	0	0	0	0	0.002	0
2	0	0	0	0	0.04	0
3	0	0	0	0	0.002	0

※ 1: IGCC slag based geopolymer, 2: Red mud, 3: IGCC slag + red mud mixed geopolymer

(Sample 1), 처리되지 않은 알루미늄제련 폐기물(Sample 2), 그리고 알루미늄제련 폐기물이 포함된 지오폐리머(Sample 3)의 ICP-OES 분석 결과를 비교한 것이다. 시편 전처리의 경우, 미국 TCLP(Toxicity Characteristic Leaching Procedure)의 기준에 따라 알루미늄제련 폐기물을 9.5 mm 이하로 분쇄를 진행하였다. 전처리를 끝낸 시편들을 20:1(용매:폐기물) 비율로 18시간 동안 진탕을 진행한 뒤, 원심분리 후 상등액을 분석하였다.

Table 3에서 볼 수 있듯이, IGCC 슬래그 기반 지오폐리머, 알루미늄제련 폐기물을 혼합한 지오폐리머, 알루미늄제련 폐기물 세 가지 모두 유해원소의 미량 용출이 거의 없어 무해하다는 것을 알 수 있으며, 용출된 중금속 원소들의 함량으로 인한 환경오염 가능성은 거의 없다는 것을 알 수 있었다.

Table 4에서는 환경부 음용수 기준을 보여주고 있다. 이를 보면 크롬이 0.05 mg/l가 넘으면 수질 기준을 초과하게 되어 사용할 수 없지만 Table 3에서 볼 수 있듯이 최대 0.04 mg/l을 넘지 않아 음용수 기준에도 부합되기 때문에 알루미늄제련 폐기물이 재활용하기에 안전한 순환자원인 것으로 판단되었다.

Table 4  
Acceptable Cr standards (2019, The Ministry of Environment)

Water quality items	Tap water	Spring water	Drinking spring water	Salt ground water	Drinking salt ground water	Deep ocean water	Common facility	Drinking ground water
Cr	0.05 mg/l	0.05 mg/l	0.05 mg/l	0.05 mg/l	0.05 mg/l	0.05 mg/l	0.05 mg/l	0.05 mg/l

#### 4. 결 론

본 연구는 알루미늄제련 폐기물을 기존 IGCC 슬래그 기반 지오폴리머에 혼합하여 제작한 지오폴리머의 압축강도 및 밀도 변화를 기존 IGCC 지오폴리머와 비교하였으며, 실제로 지오폴리머 제작이 가능한지 그리고 첨가 가능한 알루미늄제련 폐기물의 양은 얼마나 되는지를 알아보려고 하였다. 또한 알루미늄제련 폐기물을 사용하여 지오폴리머를 제작할 경우 제품이 상용화될 경우 안정성여부 또한 시험하였다.

IGCC 슬래그와 알루미늄제련 폐기물을 혼합했을 때 Si/Al 비율이 약 1.78에서 가장 좋은 압축강도 값을 보이는 것을 확인할 수 있었고, Si/Al의 변화에 따라서 압축강도 및 밀도의 변화가 크지 않아 두 재료의 혼합 허용범위가 상당히 넓어 상용화시 지오폴리머의 물성확보에 유리하다고 판단되었다.

알루미늄제련 폐기물을 첨가한 지오폴리머는 기존 IGCC 슬래그 기반 지오폴리머 대비 압축강도가 높은 것을 확인할 수 있었다. 이는 알루미늄제련 폐기물 내에 존재하는 NaOH 및 추가적으로 존재하는 성분들이 지오폴리머 반응을 촉진하여 압축강도 향상에 영향을 준 것으로 사료되었다. TCLP법에 의한 안전성 확인을 한 결과 알루미늄제련 폐기물을 재활용해 제조한 지오폴리머 제품이 무해하다는 것을 확인할 수 있었다.

결론적으로, IGCC 슬래그만을 지오폴리머의 주원료로 사용하는 것보다는 알루미늄제련 폐기물을 일정 비율로 혼합하여 사용하는 것이 지오폴리머의 물성 향상에도 도움이 된다고 판단되며, 폐기물을 재활용함으로써 매립지와 매립비용을 절감할 수 있는 효과를 얻을 수 있었다.

#### 감사의 글

이 논문은 2022년도 정부(산업통상자원부)의 재원으로 한국산업기술진흥원의 지원을 받아 수행된 연구임(P0017012, 산업혁신인재성장지원).

#### References

- [1] P. Duxson, A.F. Jimenez, J.L. Provis, G.C. Lukey, A. Palomo and J.S.J. van Deventer, "Geopolymer technology: the current state of the art", *J. Mater. Sci.* 42 (2007) 2917.
- [2] S.C. Kim, U. Kim and H. Ju, "Status and principle of coal integrated gasification combined cycle", *SAREK* (2011) 883.
- [3] B. Kim, S. Lee, C.M. Chon and H.S. Choi, "Potential of coal gasification slag as an alkali-activated cement", *J. Kor. Inst.* 27 (2018) 38.
- [4] H.S. Hong, Y. Kim, H.J. Cho, D.W. Kim, H.J. Kim and S. Kim, "Overview and future concerns for red mud recycling technology and industry", *J. KIRR* 26 (2017) 12.
- [5] H.J. Kim, "Study on the chemical property and application of red mud", *C. NUGS* 4 (2007) 85.
- [6] M.R. Choi, Y.C. Kim and Y.C. Chang, "SiC synthesis by using sludge Si power", *J. Mic. Soci.* 10 (2003) 67.
- [7] H. Kim and Y. Kim, "Mechanism of change in compressive strength of geopolymers by immersion method", *J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol.* 32 (2022) 2.
- [8] H. Kim and Y. Kim, "Property change of geopolymers after immersion", *J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol.* 31 (2021) 6.
- [9] H. Kim and Y. Kim, "Change in compressive strength of lightweight geopolymers after immersion", *J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol.* 31 (2021) 4.
- [10] S.W. Park, "Application of gaussian mixture model for the analysis of the nanoindentation test results of the metakaolin-based geopolymer with different silicon-to-aluminum molar ratio", *J. Inst. Kor.* 35 (2022) 2.
- [11] S.P. Kang, "Properties of alkali-activated slag-red mud soil pavement using recycled aggregate", *J. R. Const Res.* 4 (2016) 3.
- [12] S.K. Lee and Y.S. Kim, "A study on the strength properties of the binary blended geopolymer concrete with red-mud", *A. Inst, Kor.* 30 (2014) 1.
- [13] K. Kaya and S.S. Uzun, "Evolution of structural characteristics and compressive strength in red mud-metakaolin based geopolymer systems", *C. Inter.* 42 (2016) 7406.